

(19)日本国特許庁 (J P)

## (12) 公 開 特 許 公 報 (A)

(11)特許出願公開番号

特開平7-275656

(43)公開日 平成7年(1995)10月24日

(51)Int.Cl. <sup>6</sup>	識別記号	庁内整理番号	F I	技術表示箇所
B 0 1 D 53/56				
53/81				
53/04	Z A B G			
			B 0 1 D 53/ 34	1 2 9 A
			53/ 36	Z A B
			審査請求 未請求 請求項の数 5	O L (全 6 頁) 最終頁に続く

(21)出願番号	特願平6-70777	(71)出願人	000001199 株式会社神戸製鋼所 兵庫県神戸市中央区臨浜町1丁目3番18号
(22)出願日	平成6年(1994)4月8日	(72)発明者	堀井 雄二 兵庫県神戸市西区高塚台1丁目5番5号 株式会社神戸製鋼所神戸総合技術研究所内
		(72)発明者	山下 岳史 兵庫県神戸市西区高塚台1丁目5番5号 株式会社神戸製鋼所神戸総合技術研究所内
		(72)発明者	古田 覚士 兵庫県神戸市中央区臨浜町1丁目3番18号 株式会社神戸製鋼所神戸本社内
		(74)代理人	弁理士 明田 莞

(54)【発明の名称】 ガス浄化方法

(57)【要約】

【目的】  $\text{NO}_x$  の除去に際し、特に、単一の吸着器を用いて被処理ガスを間欠的に処理する場合に、吸着 $\text{NO}_x$  が $\text{N}_2$ に還元されずに再放出されたり、添加還元剤の一部が漏洩する可能性を減らすとともに、 $\text{NO}_x$  除去のみの場合に比較して、設備および運転上の追加をほとんど必要とすることなく共存するCOやH. C. 濃度を低下させるガス浄化方法を提供する。

【構成】 被処理ガスを炭素質吸着剤充填層に通して、被処理ガス中に含まれる窒素酸化物、一酸化炭素および炭化水素類を吸着させた前記炭素質吸着剤充填層に再生ガスを供給しながら 150～200℃の温度に加熱して、吸着させたガスを脱離させ、脱離させたガス中に含まれる窒素酸化物の濃度を反応当量的に上回る濃度の窒素酸化物還元剤を脱離させたガスに添加し、次いで、このガスを脱硝触媒充填層と酸化触媒充填層にこの順に通してから系外に放出するガス浄化方法である。

#### 【特許請求の範囲】

【請求項1】 被処理ガスを炭素質吸着剤充填層に通して、被処理ガス中に含まれる窒素酸化物、一酸化炭素および炭化水素類を吸着させた前記炭素質吸着剤充填層に再生ガスを供給しながら 150～200℃の温度に加熱して、吸着させたガスを脱離させ、脱離させたガス中に含まれる窒素酸化物の濃度を反応当量的に上回る濃度の窒素酸化物還元剤を脱離させたガスに添加し、次いで、このガスを脱硝触媒充填層と酸化触媒充填層にこの順に通してから系外に放出することを特徴とするガス浄化方法。

【請求項2】 請求項1のガス浄化方法において、酸化触媒充填層に通したガスの一部または全部を、再生操作中の炭素質吸着剤充填層に再循環させることを特徴とするガス浄化方法。

【請求項3】 窒素酸化物還元剤がアンモニアであり、かつ、脱硝触媒が酸化チタンに酸化バナジウムおよび／または酸化モリブデンを担持させたものであることを特徴とする請求項1または2記載のガス浄化方法。

【請求項4】 酸化触媒が白金および／またはパラジウムを活性成分とするものであることを特徴とする請求項1、2または3記載のガス浄化方法。

【請求項5】 窒素酸化物還元剤がアンモニアであり、酸化チタンに酸化バナジウムおよび／または酸化モリブデンを担持させたものである脱硝触媒充填層と、白金および／またはパラジウムを活性成分とする酸化触媒充填層とともに、炭素質吸着剤充填層温度以上で、かつ 250℃以下に保持されていることを特徴とする請求項1または2記載のガス浄化方法。

#### 【発明の詳細な説明】

##### 【0001】

【産業上の利用分野】本発明は、自動車排気ガスを多く含む被処理ガス、例えば、密閉型駐車場やトンネル内の換気ガスを浄化し、有害成分である窒素酸化物（以下、 $\text{NO}_x$  という）、一酸化炭素（以下、CO という）および炭化水素類（以下、H.C. という）を、窒素（以下、 $\text{N}_2$  という）、水（以下、 $\text{H}_2\text{O}$  という）、二酸化炭素（以下、 $\text{CO}_2$  という）に変換させ、周辺の大気環境を改善するガス浄化方法に関するものである。

##### 【0002】

【従来の技術】本発明で対象とする被処理ガスは常温であり、その中に含まれる $\text{NO}_x$ 、CO、H.C.の濃度は煙道排ガス等に比較して低く、さらに水蒸気などの共存成分も含めて、濃度変化が大きいのが特徴である。このため、これらを総合的に除去できる方法は見出されていないのが現状である。しかし、環境対策上、最も重要な $\text{NO}_x$ に対しては、一旦吸着剤に吸着させてから脱離濃縮したのち還元除去する方法が提案されている。

【0003】特開平5-192535号公報および特開平5-277324号公報では、 $\text{NO}_x$ の主成分である一酸化窒素（以下、

$\text{NO}$ という）をオゾン（ $\text{O}_3$ ）によって二酸化窒素（以下、 $\text{NO}_2$ という）に酸化してから、酸化マンガンを担持させたアルミナ吸着剤で吸着除去し、続いて、これにH.C.を添加した湿潤ガスを送りながら 300～400℃に加熱して $\text{NO}_x$ を脱離させ、これに還元剤を添加してから脱硝触媒を通過させて $\text{N}_2$ に還元する方法が提案されている。

【0004】また、本発明者らは、先に特開平5-76753号公報および特願平4-329652号において、 $\text{NO}_x$ の大部分を占める $\text{NO}$ を吸着性の高い $\text{NO}_2$ に予備酸化することなく、直接吸着除去できる炭素質吸着剤を得る方法を提案し、特願平5-5377号および特願平5-253178号において、その吸着剤を用いたガス浄化方法を提案している。さらに、特願平5-253178号においては、複数の吸着器を有する脱硝プロセスを、特開平5-277340号公報においては、間欠的な処理操作を行わせるための単一の主吸着器を有する脱硝プロセスを、それぞれ提案している。後者では、脱硝反応器の後流に副吸着器が設置され、さらに未反応還元剤（アンモニア（以下、 $\text{NH}_3$ という））を分解するための、例えば、白金触媒を充填した副反応器がそれらの間に設置されることによって、主吸着器に捕捉された $\text{NO}_x$ や、その還元剤の $\text{NH}_3$ が系外に放出されることが防止されるようになっている。

##### 【0005】

【発明が解決しようとする課題】特開平5-192535号公報および特開平5-277324号公報では、 $\text{NO}$ を $\text{NO}_2$ に酸化させてから吸着させるため、 $\text{NO}_2$ の除去率を高く設定しないと、 $\text{NO}_x$ 除去装置の出口ガス中の $\text{NO}_2$ 濃度が処理前に比較して低下せず、また、吸着剤の数 100℃での高温再生と、 $\text{NO}_x$ を脱離するためのH.C.（LPGなど）を必要とするなどの問題点を有している。

【0006】また、本発明者らが提案している方法（特開平5-76753号公報、特願平4-329652号、特願平5-253178号）は、 $\text{NO}$ の $\text{NO}_2$ への酸化を伴わず、かつ 200℃以下の低温で吸着剤を再生できるものの、COやH.C.を $\text{NO}_x$ と同時に除去できることは触れられていない。また、特開平5-277340号公報のように、単一の主吸着器を用いる場合には、未還元 $\text{NO}_x$ の回収に問題が残っている。

【0007】すなわち、脱硝反応器を出たガス中の $\text{NO}_x$ を吸着するために副吸着器に導く際に、高温のままでは、吸着剤の吸着性能がでないばかりか、冷却しても、それによって相対湿度が増すため、活性炭の $\text{NO}_x$ 吸着能力は高くなり、また、冷却後のガスは低温高湿度であるため、系内外で結露する可能性もある。このため、副吸着器の吸着剤充填量を多くする必要があるほか、周囲条件によっては、副吸着器出口ガスを再加熱する必要があることが分かった。さらに、副反応器においては、 $\text{NH}_3$ が酸化分解触媒によって過剰に酸化にされて $\text{NO}_x$ を生成しないような反応条件に限定する必要があることも分かった。

【0008】本発明は、上記の問題点を解決するために

なされたもので、 $\text{NO}_x$  の除去に際し、特に、単一の吸着器を用いて被処理ガスを間欠的に処理する場合に、吸着  $\text{NO}_x$  が  $\text{N}_2$  に還元されずに再放出されたり、添加還元剤の一部が漏洩する可能性を減らすとともに、 $\text{NO}_x$  除去のみの場合に比較して、設備および運転上の追加をほとんど必要とすることなく共存する  $\text{CO}$  や  $\text{H.C.}$  濃度を低下させるガス浄化方法を提供することを目的とする。

#### 【0009】

【課題を解決するための手段】本発明の要旨は、被処理ガスを炭素質吸着剤充填層に通して、被処理ガス中に含まれる窒素酸化物、一酸化炭素および炭化水素類を吸着させた前記炭素質吸着剤充填層に再生ガスを供給しながら  $150\sim 200^\circ\text{C}$  の温度に加熱して、吸着させたガスを脱離させ、脱離させたガス中に含まれる窒素酸化物の濃度を反応当量的に上回る濃度の窒素酸化物還元剤を脱離させたガスに添加し、次いで、このガスを脱硝触媒充填層と酸化触媒充填層にこの順に通してから系外に放出するガス浄化方法である。

【0010】上記のガス浄化方法において、酸化触媒充填層に通したガスの一部または全部を、再生操作中の炭素質吸着剤充填層に再循環させるガス浄化方法である。

【0011】窒素酸化物還元剤がアンモニアであり、かつ、脱硝触媒が酸化チタンに酸化バナジウムおよび／または酸化モリブデンを担持させたものであるガス浄化方法である。

【0012】酸化触媒が白金および／またはパラジウムを活性成分とするものであるガス浄化方法である。

【0013】窒素酸化物還元剤がアンモニアであり、酸化チタンに酸化バナジウムおよび／または酸化モリブデンを担持させたものである脱硝触媒充填層と、白金および／またはパラジウムを活性成分とする酸化触媒充填層がともに、炭素質吸着剤充填層温度以上で、かつ  $250^\circ\text{C}$  以下に保持されているガス浄化方法である。

#### 【0014】

【作用】被処理ガス中に含まれる  $\text{NO}_x$ 、 $\text{CO}$ 、 $\text{H.C.}$  は、常温で炭素質吸着剤充填層に通すことにより吸着剤に吸着される。 $\text{NO}_x$  の過半を占める  $\text{NO}$  は  $\text{NO}_2$  に予め酸化して吸着させてもよく、特開平5-76753号公報および特願平4-329652号に開示されている  $\text{NO}$  吸着能力の高い吸着剤を用いて、そのまま吸着させてもよい。炭素質吸着剤は、一般にある程度の  $\text{CO}$ 、 $\text{H.C.}$  吸着能力を有しているが、上記の特開平5-76753号公報および特願平4-329652号に開示されている吸着剤は、熱処理によって疎水化の程度が高まっているため、 $\text{CO}$ 、 $\text{H.C.}$  吸着能力がさらに高く、有利である。

【0015】吸着された  $\text{NO}_x$ 、 $\text{CO}$ 、 $\text{H.C.}$  は、炭素質吸着剤充填層に再生ガスを供給しながら加熱することにより吸着剤から脱離する。この加熱温度が低すぎると脱離が進まず、吸着と脱離の繰り返し操作中に、吸着剤中の残留ガス濃度が次第に増し、さらに脱離速度も低下するの

で、最低加熱温度は  $150^\circ\text{C}$  とした。加熱温度が  $200^\circ\text{C}$  を超えると、吸着剤の酸化が促進され、吸着性能低下が早まる。したがって、加熱温度は  $150\sim 200^\circ\text{C}$  の範囲に限定した。このようにして、吸着された  $\text{NO}_x$ 、 $\text{CO}$ 、 $\text{H.C.}$  は、炭素質吸着剤から脱離され、炭素質吸着剤は再生される。再生ガスは吸着剤から脱離した  $\text{NO}_x$ 、 $\text{CO}$ 、 $\text{H.C.}$  を脱硝触媒充填層、酸化触媒充填層に通すための搬送ガスとして働き、一般には空気を使用する。

【0016】つぎに、脱離させたガス中に含まれる窒素酸化物の濃度を反応当量的に上回る濃度の窒素酸化物還元剤を脱離させたガスに添加したのち、このガスを脱硝触媒充填層と酸化触媒充填層にこの順に通してから系外に放出する。ここで反応当量とは  $\text{NO}_x$  と添加される還元剤とが、つぎに通す脱硝触媒充填層の運転条件下で進む主反応に対する量論のことであり、 $\text{NH}_3$  を還元剤とするときには、 $4\text{NO}+4\text{NH}_3+\text{O}_2\rightarrow 4\text{N}_2+6\text{H}_2\text{O}$  のように反応が進むため、 $\text{NO}:\text{NH}_3=1:1$ （モル濃度比）となる（炭素質吸着剤からの脱離  $\text{NO}_x$  は全て  $\text{NO}$  であるので、 $\text{NO}_2$  の存在は考える必要はない。）。すなわち、脱離してくる  $\text{NO}_x$  を常に上回る濃度の還元剤を添加して脱硝触媒充填層で  $\text{NO}_x$  を十分に還元して除去し、余剰の還元剤が生じる条件に保てばよい。制御上の問題がない範囲で余剰還元剤量を最小にすればよい。

【0017】還元剤を添加した脱離ガスは触媒との反応性を高めるために加熱されたのち、脱硝触媒充填層、ついで酸化触媒充填層に通され  $\text{NO}_x$ 、 $\text{CO}$ 、 $\text{H.C.}$  および還元剤を還元あるいは酸化して除去したのち系外に放出される。しかし、脱硝触媒充填層、酸化触媒充填層に通したガスは温度が高いため、このガスを炭素質吸着剤の再生操作に必要とする熱源として利用することができる。このため、酸化触媒充填層に通したガスの一部または全部を、再生操作中の炭素質吸着剤充填層に再循環させる。再生操作を開始した当初の系内温度が上昇しつつある状態では、次第にガス容積が増すので、増加容積分を放出し、それ以外を再循環すればよい。再循環の割合を増すことは、何らかの異常時に処理しきれなかった  $\text{NO}_x$  あるいは余剰還元剤の系外への漏洩防止にも有効である。

【0018】脱硝触媒は、酸化チタンを担体として酸化バナジウムおよび／または酸化モリブデンを活性種としたものが、約  $150^\circ\text{C}$  以上の温度で活性が得られるので最も好ましいが、例えば、 $\text{H.C.}$  を還元ガスとして、銅担持ゼオライトを脱硝触媒とする組み合わせでもよく、脱硝触媒は上記系に限られるものではない。

【0019】脱離ガスに  $\text{NO}_x$  還元剤を添加して、つぎの脱硝触媒充填層で  $\text{NO}_x$  を還元除去するに際して、上記したように還元剤を過剰に添加して、脱離  $\text{NO}_x$  をほぼ完全に除去することが、脱硝触媒充填層での脱硝率を向上するのに有効である。このためには、触媒充填量を増して、空間速度（ガス流量  $[\text{Nl/h}]$  / 触媒充填量  $[\text{l}]$ ）

を下げることを望ましい。反応効率は、触媒の形状、粒径や活性種の担持量などに依存するため、適切な空間速度は一概には規定できないが、 $\text{NO}_x$  の還元性能を上げるためには低い方がよく、 $\text{NH}_3$  を還元剤として、酸化チタンを担体とした酸化バナジウムおよび／または酸化モリブデンを脱硝触媒として反応させる場合には、5000/h以下、好ましくは3000/h以下がよい。

【0020】脱硝触媒充填層での脱硝反応後には、余剰の還元剤の他に、部分的あるいはほとんど除去できなかったCO、H.C.を酸化処理するために、脱硝触媒充填層のあとに酸化触媒充填層が設けられている。酸化触媒には、マンガン系あるいはペロブスカイト系触媒などに比較して、白金および／またはパラジウムを活性成分とする貴金属触媒が低温活性が高いので好ましい。担体にはアルミナやコーゼライトが代表的に用いられる。上記の各成分は、本触媒によって $\text{N}_2$ （還元剤に $\text{NH}_3$ を用いる場合）、 $\text{CO}_2$ 、 $\text{H}_2\text{O}$ に変化し、無害化される。その際、上流の脱硝触媒充填層で還元除去されなかった未反応 $\text{NO}_x$ が微量存在する場合には、貴金属触媒の有する $\text{NH}_3$ 還元脱硝能による除去効果が期待される。しかし、反応条件を適切に選定しないと、除去性能が低かったり、特に、 $\text{NH}_3$ を還元剤とする場合には、 $\text{NH}_3$ が過剰酸化されて $\text{NO}_x$ が再生成することがある。

【0021】貴金属触媒充填層温度は、炭素質吸着剤充填層温度以上、250℃以下としたが、その理由は、150℃程度以下であれば、 $\text{NH}_3$ およびH.C.の除去効率が低くなるため、除去性能が悪くなり充填量を増す必要が生じ、一方、250℃超えでは、 $\text{NH}_3$ の過剰酸化が生じるためである。すなわち、貴金属触媒充填層温度は、脱硝触媒充填層も含めて150℃以上の温度であればよく、温度を高くするほど反応性が上がるので、吸着剤（活性炭）の再生温度以下に冷却する必要もなく、炭素質吸着剤充填層温度以上とした。また、200℃以上にすると、循環ガスを冷却して炭素質吸着剤充填層に戻す必要があるため、特に、反応性の高さを必要としないかぎり貴金属触媒充填層温度は200℃以下とすることが好ましい。

【0022】このことから分かるように、酸化チタンを担体とした酸化バナジウムおよび／または酸化モリブデン系の脱硝触媒と、貴金属系酸化触媒とを同一の反応容器内に充填することができる。さらに、炭素質吸着剤も含めて同一の反応容器内に充填することも可能である。また、このときの空間速度は、高すぎると酸化効率が低く、 $\text{NH}_3$ を還元剤とする場合は、低すぎると $\text{NH}_3$ の過剰酸化によって $\text{NO}_x$ が生成しやすくなるので、2000/h～20000/h程度が好ましい。

【0023】

【実施例】本発明に係わるガス浄化方法の概念図を図1に示す。 $\text{NO}_x$ 、COおよびH.C.を含む常温の被処理ガス（空気）は導入口1から開閉弁16を経て吸引ファン2により系内に取り込まれ、開閉弁3を経て炭素質吸着剤が

充填された吸着器4に入る。吸着器4で上記の各成分は炭素質吸着剤に吸着され、濃度が減少する。吸着器4で浄化された空気（被処理ガス）は開閉弁5を経て放出口6から系外に放出される。吸着器4の出口における被処理ガス中の上記各成分の濃度が所定の限界値に達すると、吸引ファン2が停止し、開閉弁3および5が閉じられて吸着剤の再生操作に移る。

【0024】すなわち、開閉弁7および8が開かれ、再生用ファン13および加熱器10が稼働し、系内のガスは吸着器4→開閉弁7→加熱器10→脱硝触媒反応器11→酸化触媒反応器12→再生用ファン13→開閉弁8→吸着器4の順に循環系を流れ、かつ $\text{NO}_x$ 還元剤としての還元ガスが注入口14から導入されて、吸着器4内の炭素質吸着剤に吸着されていた $\text{NO}_x$ 、COおよびH.C.の脱離と、脱硝触媒反応器11内での $\text{NO}_x$ の $\text{N}_2$ への還元と、酸化触媒反応器12内でのCO、H.C.および過剰の $\text{NO}_x$ 還元ガスの酸化が行われる。この間に吸着器4内の炭素質吸着剤は再生される。 $\text{NO}_x$ 還元ガスは、吸着器4内の炭素質吸着剤から脱離する $\text{NO}_x$ 濃度に応じて、それを反応当量的に上回るように注入口14から導入される。

【0025】脱硝触媒は、代表的には酸化チタンに酸化バナジウムおよび／または酸化モリブデンを担持させたものであり、その際の還元ガスは $\text{NH}_3$ となる。酸化触媒は、代表的には白金および／またはパラジウムを活性成分とするものである。このような触媒の組み合わせでは、吸着器4も含めて、同一温度で稼働させることができるので、循環系内にはガス冷却器は設けられていないが、必要な場合には、開閉弁8の前あるいは後ろに設けることができる。また、脱硝触媒反応器11と酸化触媒反応器12は一体のものとすることもできる。

【0026】加熱器10で加熱されたガスの循環と、吸着器4内の炭素質吸着剤から脱離したガスによって、系内のガス容積は次第に増加するので、系内圧を上昇させないために膨張分のみを排出口15から逃がし、それ以外は系内を循環させることによって、再生熱の有効利用をはかるとともに、異常時の各成分の系外への漏洩を最少におさえる。

【0027】なお、吸着器4内の炭素質吸着剤から $\text{NO}_x$ などが脱離する際に、脱硝触媒反応器11および酸化触媒反応器12が所定温度まで上昇していなければ、十分な反応性が期待できないので、脱硝触媒反応器11および酸化触媒反応器12を予め加熱しておくことが有効である。このためには、吸着器4が吸着操作中に、開閉弁7および8が閉じられた状態で開閉弁9を開いて、加熱器10→脱硝触媒反応器11→酸化触媒反応器12→再生用ファン13→開閉弁9の循環系を構成させて、脱硝触媒反応器11および酸化触媒反応器12を予熱しておく。この際の膨張ガスも排出口15から排出される。

【0028】このようにして、再生操作が終了すると、吸着器4は再生操作の循環系から切り離され、開閉弁16

が閉じられ、開閉弁18、3、5が開かれ、吸引ファン2によって導入口17から導入された再生用ガス（通常は大気）によって冷却され、つぎの吸着操作に備える。

【0029】つぎに、図1に示した本発明に係わるガス浄化方法の概念図に基づいたガス浄化の実施例について説明する。内径43mmの吸着器に、①フェノール樹脂粉末を直径約3mm、長さ約5mmの円柱状に成形後、750℃の純水蒸気中で賦活して得られた活性炭（BET比表面積約400000m<sup>2</sup>/kg、ミクロ孔平均径約0.7nm）、または、②その活性炭をさらに800℃のH<sub>2</sub>で熱処理した活性炭（前記特性とほぼ同様）を30cmの長さに充填し、NO、C

O、ベンゼン、キシレンおよびブタジエンを約5ppmvずつ添加した空気（温度22～25℃、相対湿度40～50%）を、44l/分で供給し、12h吸着を続けた。吸着器入口・出口のNO<sub>x</sub>の分析は化学発光法で行った。また、COおよび炭化水素類（ベンゼン、キシレンおよびブタジエン）の分析は、FIDを検出器（メタンコンバータ付き）とするガスクロマトグラフで行った。この時間内の平均除去率を表1に示す。

【0030】

【表1】

	NO <sub>x</sub>	CO	炭化水素（ベンゼン、キシレン、ブタジエン）
吸着剤①	87%	57%	73%
吸着剤②	93%	69%	80%

【0031】表1に示すように、両吸着剤とも良好な除去性能が得られ、特に、特願平4-329652号に開示されている方法による吸着剤②は優れた除去性能を有している。

【0032】つぎに、吸着剤②を吸着器から取り出し攪拌した後、その1/3をヒータを巻き付けた内寸20mmの角形容器に充填し、その後流側にハニカム状酸化チタン担持酸化バナジウム触媒（以下、酸化チタン触媒という）

（堺化学工業社製、5mmピッチ格子状、4セル×4セル、長さ50mm）を置き、さらに、その後流側にアルミナ担持白金触媒（エヌ、イー、ケムキャット社製、球状品）を30mmの長さの容器に充填し、この容器の入口・出口を、途中に循環ポンプとピストン機構によって内部容積を変えることのできるバッファ容器を介して配管接続した。また、配管の途中にはガス注入口を設け、シリンダを用いて還元ガスを注入できるようにした。

【0033】循環ポンプによって系内ガスを循環させるとともに、容器を200℃まで昇温した。ガスの脱離およ

び膨張による系内ガス容積の増加はバッファ容器で吸収し、系内は大気圧に保った。系内温度が安定してから、上記吸着剤②の推定吸着NO量の2倍量のNH<sub>3</sub>（0.1%のN<sub>2</sub>バランスガス）をガス注入口から徐々に注入した。注入完了後、しばらくガスを循環させたのち、循環ガスの一部をサンプリングし、CO、H.C.の濃度をガスクロマトグラフで分析した。また、NH<sub>3</sub>およびNO<sub>x</sub>（NO+NO<sub>2</sub>）濃度はガス検知管で測定した。

【0034】また、白金触媒を除いて、これ以外は上記と同一の条件で操作し、同様に分析を行った。さらに、酸化チタン触媒を除いて、吸着剤のみを充填して、上記と同一の条件で操作し、同様に分析を行った。分析結果を表2に示す。表中の括弧内の数値は、実験開始時に吸着されていたはずの各成分の推定量に対する実験終了時に系内に残った各成分の未反応量（分析濃度×系内ガス推定量）の割合をモル%で示したものである。

【0035】

【表2】

	吸着剤②のみ	吸着剤②+酸化チタン触媒	吸着剤②+酸化チタン触媒+白金触媒
NO <sub>x</sub> (NO+NO <sub>2</sub> )	検出 (75)	検出されず (0)	検出されず (0)
NH <sub>3</sub>	検出 (83)	検出 (23)	検出されず (0)
CO	検出 (96)	検出 (57)	検出されず (0)
C.H.	検出 (95)	検出 (63)	検出 (6)

【0036】表2に示すように、炭素質吸着剤のみでも、NH<sub>3</sub>によるNO<sub>x</sub>還元特性をある程度有しているので、低率ではあるがNO<sub>x</sub>が減少し、それに応じてNH<sub>3</sub>も減少した。酸化チタン触媒を用いると、NO<sub>x</sub>は完全に除去された。NH<sub>3</sub>は脱硝反応から予想される余剰量以上に減少したが、これは酸化チタン触媒に吸着されたためと考えられる。余剰のNH<sub>3</sub>を完全に除去するには、白金触

媒の使用が必要であった。CO、H.C.は炭素質吸着剤のみではほとんど変わらなかった。酸化チタン触媒を用いると、それらはある程度除去されたが、白金触媒を用いるとほぼ完全に除去された。

【0037】したがって、上記のような脱硝触媒と酸化触媒を用いることによって、炭素質吸着剤に吸着されたNO<sub>x</sub>、CO、H.C.とNO<sub>x</sub>還元剤として添加されるNH<sub>3</sub>の余

剰分を高効率で除去できることが分かった。

【0038】

【発明の効果】以上述べたところから明かなように、本発明によれば、被処理ガス中に含まれる $\text{NO}_x$ 、COおよびH.C.を、 $\text{NO}_x$ のみを除去する場合に比べて設備および運転上の追加をほとんど必要とすることなく、また、その際に添加される還元ガスの余剰分の漏洩もなく、高い効率で除去することができる。

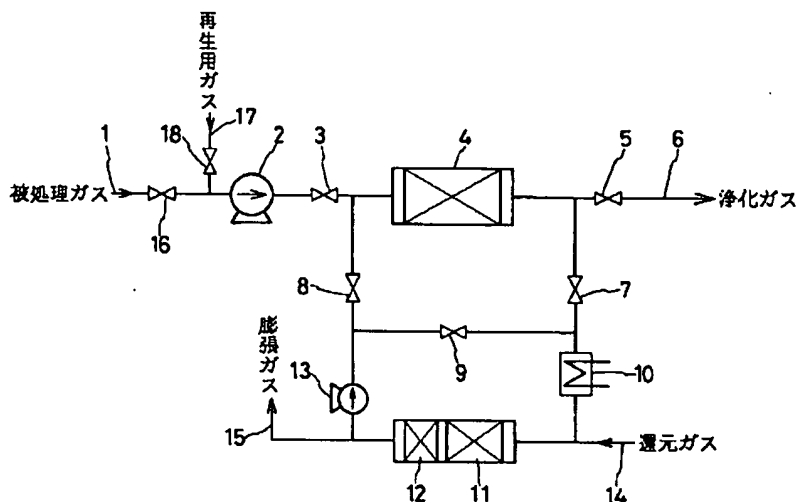
【図面の簡単な説明】

【図1】本発明に係わるガス浄化方法の概念図を図1に示す。

【符号の説明】

1…導入口、2…吸引ファン、3…開閉弁、4…吸着器、5…開閉弁、6…放出口、7…開閉弁、8…開閉弁、9…開閉弁、10…加熱器、11…脱硝触媒反応器、12…酸化触媒反応器、13…再生用ファン、14…注入口、15…排出口、16…開閉弁、17…導入口、18…開閉弁。

【図1】



フロントページの続き

(51)Int. Cl.<sup>6</sup>

B01D 53/86

53/94

識別記号

ZAB

庁内整理番号

F I

技術表示箇所

B01D 53/36

103 B